This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

Š.										* , 0			
	x	-			*								
		• .				Y.							•
20.		,	¥ %					*				11	
					• .			* * * * * * * * * * * * * * * * * * * *					
	*				•						* ea		
				*			£ 3.		4. 鞍				
	4.			* 15°		Ţ.		× .	4		t 0		
7	er er	4.		<i>F</i>	- 3 ⁴ 5				41 7 (14, 1)				
						,0 3				P			
	V 38		14 × 11.5		* * *		Mar Mary			(a, f			× 1
	T	20 T	, *, *	8		•		· **					
	Ex.	, r = "						a at .		, ,			
									***		4		ÿr j
	2+1												Š.
				***					5 1€ 16 -8.				*. ,
	5 j 115	in.		2				\$	1 - 4 - 4 - 4 - 4 - 4 - 4 - 4 - 4 - 4 -		4 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 -		
		***			5 - 4· 5 - 4			- 6					* 1
									, A7.				
	, 17 E	Y			Charles and As					. *		; ·	
	· . <u>.</u>							**	, 1	, s ''',		V.	
		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	× NC ×										
			20 (A)	**************************************									
		\$ 15 mg = 20 mg		5 1 Apr					*				
	19.			9.73	A			* M	7		* * * * * * * * * * * * * * * * * * *		
	2		. २ ^६			ala Si. V	y	en e		1 4			
	1 - 1	*	2	· #		3.4				*			
		, in the second			· e	M	¥ .						
	٧.	en er	*			***			· ·				
	T.			** 4				¥			*		
	3.2	26						A			·		
	1 P 3	ž.	4				*		4.				
4		40	***		\$ a			v.		*			
-ie A	e ^{ri}	£.				<i>3</i> ⁽¹⁾	-0	1 No.	A.				
L		- 4			8	30 - 1			3.00	\$			
	5				n Av		1.						Č.

Offenlegungsschrift ₀₀ DE 3209223 A1

(51) Int. Cl. 3: C 07 C 1/24 C 07 C 11/04



DEUTSCHES PATENTAMT

P 32 09 223.7 (21) Aktenzeichen: 2 Anmeldetag: 13. 3.82 (43) Offenlegungstag: 15. 9.83

C 07 C 11/06

(71) Anmelder:

BASF AG, 6700 Ludwigshafen, DE

(72) Erfinder:

Lehnert, Rudi, Dipl.-Chem. Dr.; Marosi, Laszlo, Dipl.-Chem. Dr., 6700 Ludwigshafen, DE; Leutner, Bernd, Dipl.-Chem. Dr., 6710 Frankenthal, DE; Schlimper, Hans-Ulrich, Dipl.-Chem. Dr., 6720 Speyer, DE; Schwarzmann, Matthias, Dipl.-Chem. Dr., 6703 Limburgerhof, DE; Stabenow, Joachim, Dipl.-Phys. Dr., 6940 Weinheim, DE

Werfahren zur Herstellung von Olefinen aus Methanol und/oder Dimethylether

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Olefinen durch Umsetzung von Methanol und/oder Dimethylether an Zeolithkatalysatoren bei Temperaturen zwischen 300 und 600° C, bei dem die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine in mehreren hintereinandergeschalteten Reaktoren durchgeführt wird. Die Reaktoren sind entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt oder die darin befindlichen Katalysatoren liegen in verschiedenen "Aktivitätszuständen" vor. Anstelle von zwei Reaktoren kann man die Umsetzung auch in einem Etagenreaktor mit einer in den einzelnen Katalysatorschichten getrennt regelbaren Temperatur ausführen.



0.2. 0050/35785

<u>Patentansprüche</u>

- Verfahren zur Herstellung von Olefinen durch Umsetzung von Methanol und/der Dimethylether an Zeolithkataly-5 satoren bei Temperaturen zwischen 300 und 600°C. Drücken von 0,1 bis 10 bar, einer stündlichen Katalysatorbelastung von 0,1 bis 100 g Methanol und/oder Dimethylether/g Katalysator, gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, 10 daß die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine in mehreren hintereinandergeschalteten Reaktoren durchgeführt wird und dabei der zu mindestens 20 % aus Olefinen bestehende Produktstrom aus dem ersten Reaktor ohne Abtrennung eines Teiles des Reaktorpro-15 duktes in einen zweiten Reaktor führt und dort weiter zu einem Produkt mit einem erhöhten Olefinanteil umgesetzt wird, wobei die Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind und/oder die darin befindlichen Katalysatoren in verschiedenen 20 "Aktivitätszuständen" vorliegen und durch die Reaktionsführung mindestens zum Teil verschiedene voneinander entkoppelte Reaktionsschritte der Gesamtumsetzung katalysieren.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man anstelle von 2 Reaktoren die Umsetzung in einem Etagenreaktor mit einer in den einzelnen Katalysatorschichten getrennt regelbaren Temperatur ausführt, wobei mindestens eine der Katalysatorschichten mit einem von den anderen Schichten verschiedenen Katalysator beschickt ist oder in einem anderen "Aktivitätszustand" vorliegt.
- 35 675/81 Gr/Ke 11.03.1982

- 2 **-**

0.2. 0050/35785

- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere hintereinandergeschaltete Wirbelbettre-aktoren oder ein mehrstufiger Wirbelschichtrektor verwendet werden, wobei diese Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind oder die darin befindlichen Katalysatoren sich in unterschiedlichen "Aktivitätszuständen" befinden.
- 4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
 daß mehrere hintereinandergeschaltete Wanderbettreaktoren oder ein mehrstufiger Wanderbettreaktor
 verwendet werden, wobei diese Reaktoren entweder mit
 verschiedenen Katalysatoren beschickt sind oder die
 darin befindlichen Katalysatoren sich in unterschiedlichen "Aktivitätszuständen" befinden.

20

5

25

30



10

15

20

-3 - 0.z. 0050/35785

Verfahren zur Herstellung von Olefinen aus Methanol und/oder Dimethylether

Es ist bekannt, Olefine aus Methanol und/oder Dimethylether 5 in Gegenwart von Zeolithkatalysator herzustellen.

In neuerer Zeit gewinnen Bemühungen, Methanol zur Herstellung von Olefinen zu verwenden, zunehmendes Interesse. Methanol kann man aus Kohle, durch Vergasung und Konvertierung mit Hilfe bekannter Verfahren ölunabhängig herstellen. Gelingt es, Methanol in technisch befriedigender Weise in niedere Olefine umzuwandeln, so können die heute angewendeten Weiterverarbeitungsverfahren der chemischen Industrie auch für die Verwendung von Kohle als Rohstoff beibehalten werden.

In den vergangenen Jahren sind daher mehrere Verfahren entwickelt worden, die die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine zum Gegenstand haben. Solche Verfahren sind beispielsweise beschrieben in der US-PS 4 049 573 und der DE-OS 28 28 835.

Ein gemeinsames Merkmal dieser bekannten Verfahren besteht darin, daß sie zur Umwandlung von Methanol in Olefine 25 Zeolithkatalysatoren verwenden. Neben Unterschieden in der Art des verwendeten Zeolithkatalysators gibt es auch Unterschiede in der Reaktionsführung. So kann man die Umsetzung von Methanol und/oder Dimethylether mit oder ohne Anwendung eines Verdünnungsmittels, bei vollständigem oder nicht vollständigem Umsatz ausführen. Die Umsetzung kann adiabatisch, isotherm aber auch in einem Wirbelbettreaktor durchgeführt werden. Die übliche Anordnung bei Festbettreaktoren besteht aus mehreren Reaktoren, die zueinander parallel geschaltet sind, wobei mindestens ein Reaktor regeneriert wird. Nicht umgesetzte Ausgangsprodukte,

10

15

20

25

30

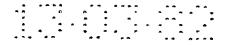
- 2 -

o. z. 0050/35785

Methanol oder Dimethylether, können in den Prozeß zurückgeführt werden. In der US-PS 4 052 479 ist z.B. ein Verfahren zur Herstellung von Olefinen aus Methanol beschrieben, wobei Olefine zurückgeführt werden. In der US-PS 4 058 576 ist ein Zweistufenverfahren zur Umsetzung eines niederen 5 Alkohols in Olefine oder Benzin beschrieben, wobei zwei hintereinandergeschaltete Reaktoren zum Einsatz kommen. Zur besseren Kontrolle der Reaktionswärme wird dabei im ersten Reaktor Methanol in Dimethylether umgewandelt und ein Teil der Reaktionswärme abgeführt.

Die bisherigen Erfahrungen zeigen, daß unter technisch realisierbaren Bedingungen die Prozeßführung, insbesondere aber die Herstellung von größeren Mengen von Ethylen, außerordentlich schwierig ist. Mit dotierten Katalysatoren kann man nur bei geringen Umsätzen an Methanol und/oder Dimethylether hohe Ethylenausbeuten erzielen. Methanol und Dimethylether müssen daber nach Abtrennung von den Kohlenwasserstoffen in den Prozeß zurückgeführt werden. An aktiven und hydrophilen Katalysatoren kann man zwar auch bei 100 %igem Umsatz hohe Ausbeuten an Ethylen erhalten, wenn man z.B. 25 %ige Methanollösung umsetzt. Die Wärmerückgewinnung und die relativ niedrige Standzeit der Katalysatoren, häufiges Regenerieren, verursachen aber zusätzliche Probleme. In den meisten der bisher bekannten Prozessen beobachtet man auch eine irreversible Alterung des Katalysators, dadurch entstehen hohe Katalysatorkosten.

Es wurde nun gefunden, daß man auch bei hohen Methanolkonzentrationen und vollständigem Umsatz Olefine in verbesserten Ausbeuten durch Umsetzung von Methanol und/oder Dimethylether an Zeolithkatalysatoren bei Temperaturen zwischen 300 und 600°C, Drücken von 0,1 bis 10 bar, einer stündlichen Katalysatorbelastung von 0,1 bis 100 g Methanol und/oder Dimethylether/g Katalysator, gegebenenfalls in 35



- オー

o. z. 0050/35785

- 5.

in Gegenwart von Verdünnungsmitteln erhält, wenn man die Umwandlung von Methanol und/oder Dimethylether in Olefine in mehreren hintereinandergeschalteten Reaktoren durchführt und dabei der zu mindestens 20 % aus Olefinen bestehende Produktstrom aus dem ersten Reaktor ohne Abtrennung eines Teiles des Reaktionsproduktes in einen zweiten Reaktor geführt und dort weiter zu einem Produkt mit einem höheren Olefinanteil umgesetzt wird, wobei die Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind und/oder die darin befindlichen Katalysatoren in verschiedenen "Aktivitätszuständen" vorliegen und durch die Reaktionsführung mindestens zum Teil verschiedene voneinander entkoppelte Reaktionsschritte der Gesamtumsetzung katalysieren.

15

20

25

30

35

10

Die Umsetzung von Methanol in Dimethylether in einem vorgeschalteten Reaktor wird im Sinne der Erfindung nicht als eine getrennte Stufe angesehen, da der Produktstrom aus dem ersten Reaktor gemäß der vorliegenden Erfindung mindestens 20 % Olefine enthalten soll.

Eine besondere Ausführungsform besteht darin, daß man einen Etagenreaktor mit einer in den einzelnen Katalysatorschichten getrennt regelbaren Temperatur verwendet, wobei mindestens eine der Katalysatorschichten mit einem von den anderen Schichten verschiedenen Katalysator beschichtet ist oder in einem anderen "Aktivitätszustand" vorliegt. Man kann aber auch mehrere hintereinandergeschaltete Wirbelschichtreaktoren oder einen mehrstufigen Wirbelschichtreaktor verwenden, wobei diese Reaktoren entweder mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind oder die darin befindlichen Katalysatoren sich in unterschiedlichen "Aktivitätszuständen" befinden. Ebenso kann man mehrere hintereinandergeschaltete Wanderbettreaktoren oder einen mehrstufigen Wanderbettreaktor verwenden, die

o.z. 0050/35785

- 6.

mit verschiedenen Katalysatoren beschickt sind oder die 1 darin befindlichen Katalysatoren sich in verschiedenen 2 "Aktivitätszuständen" befinden. 3

4 5

7

8

9

Es war überraschend, daß durch die erfindungsgemäße Reaktionsführung bei 100 % Umsatz auch bei Verwendung von 50 bis 100 %igen Methanollösungen im Vergleich zu einem einstufigen Verfahren erhöhte Olefine -, insbesondere erhöhte Ethylenausbeuten, erhalten werden.

10

Ein besonderer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens be-11 steht darin, daß durch Hintereinanderschalten von mehreren 12 Katalysatoren in den einzelenen Reaktionszonen die ver-13 schiedenen Reaktionen der Gesamtumsetzung, z.B. Bildung 14 von Ethylen, Homologisierung von Olefinen oder Krackung 15 von Olefinen und Paraffinen entkoppelt werden können und 16 mit Hilfe von verschiedenen Katalysatoren oder durch ver-17 verschiedene "Aktivitätszustände" desselben Katalysators vor-18 teilhafter in die gewünschte Richtung zu lenken sind als 19 es durch die Verwendung eines einzelnen, auch multi-20 funktionellen, Katalysators in nur einem Reaktor möglich 21 ist. Die Steuerung der Katalyse wird erheblich erleichtert. ' 22

23 24

25

26

27

28

29

30

Unter "Aktivitätszuständen" des Katalysators im Sinne der Erfindung versteht man z.B. die Aktivität in Abhängigkeit von der Temperatur, dem Kohlegehalt oder der Verdünnung mit amorphen Bindemitteln. Es können auch dotierte oder ionenausgetauschte Formen desselben Zeolithtyps zum Einsatz kommen, oder auch verschiedene Zeolithtypen. Besonders geeignet sind Alumino- und Borosilikatzeolithe vom Pentasil-Typ oder vom Typ ZSM-34.

31 32

Geeignete Reaktortypen zur Durchführung des erfindungsge-33 mäßen Verfahrens sind z.B. der "Etagenreaktor" mit getrennt 34 regelbarer Temperatur in den einzelnen Katalysatorzonen 35

5

10

15

O.Z. 0050/35785

oder mehrere hintereinandergeschaltete Wirbelschicht-, Wanderbett- oder adiabatische oder isotherme Reaktoren. Die Reaktoren können, wie z.B. im Etagenreaktor, als Reaktoren mit getrennten Heizungssystemen oder getrennten Katalysatorzonen ausgestaltet sein. Erfindungswesentlich ist das Vorliegen von verschiedenen Katalysatorzonen mit unterschiedlicher Aktivität. Diese unterschiedliche Aktivität kann durch den Einsatz von verschiedenen Katalysatoren und/oder durch verschiedene "Aktivitätszustände" desselben Katalysators erreicht werden.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren wird bei zwei- oder mehrstufiger Arbeitsweise mit verschiedenen Temperatureinstellungen gearbeitet, vorzugsweise wird bei z.B. einer zweistufigen Anordnung der genannten Reaktortypen bzw. der Ausführung in zwei Reaktoren in erster Stufe bzw. Reaktor bei Temperaturen von 200 bis 400°C, insbesondere 280 bis 350°C, in zweiter Stufe bzw. im zweiten Reaktor bei Temperaturen von 450 bis 600°, insbesondere von 530 bis 580°C gearbeitet. 20 .

Es sind auch Kombinationen aus diesen Reaktorsystemen anwendbar, die eine Korrektur des Temperaturprofils der exothermen Methanolumwandlung im Vergleich zu der adiabatischen oder isothermen Fahrweise ermöglichen. Von bekannten Reaktoranordnungen, in den sich entlang der Katalysatorschicht beim Durchgang der Stoffe auch von sich aus unterschiedliche "Aktivitätszustände" des Katalysators ausbilden können, unterscheidet sich die erfindungsgemäße Anordnung durch die getrennte regelbare Anordnung von Schichten mit Steuermöglichkeit in denen sich die "Aktivitätszustände" des Katalysators ausbilden bzw. durch eine Anordnung von verschiedenen Katalysatoren in diesen getrennten Schichten.

35

30

- 6 -

o. z. 0050/35785

- 8.

Man kann auch mehr als zwei Reaktoren ohne Abtrennung eines des Teiles des Produktstromes hintereinanderschalten, wenn es die spezielle Reaktionsführung erfordeilich macht.

- Eine Auftrennung des Produktstromes wird vorteilhafter-5 weise erst nach dem vollständigen Umsatz von Methanol und/oder Dimethylether vorgenommen. Nach der Auftrennung kann man die Olefine in an sich bekannter Weise weiterverarbeiten, z.B. durch "steam-cracken" eines Teils der Produkte, Homologisierung oder Cracken von Olefinen an 10 zeolithischen oder anderen Katalysatoren oder beispielsweise die Umwandlung von Propylen in Ethylen und Buten (Triolefinprozeß) oder nach anderen Weiterverarbeitungsverfahren. Es ist auch möglich, einen Teil der Reaktionsprodukte, z.B. Propylen, Butene oder C5+-Kohlenwasserstoffe 15 vorzugsweise in eine Zone des Katalysatorsystems zurückzuführen, in der nur noch eine stark verminderte Konzentration an Methanol und/oder Dimethylether vorliegt. Es kann sich auch als vorteilhaft erweisen, in bestimmte Zonen des Katalysatorsystems Wasserdampf oder andere Verdünnungs-20 mittel oder z.B. zwecks Konstanthaltung des Produktspektrums Methanol oder Dimethylether zusätzlich zu dem Produktstrom einzuleiten.
- 25 Eine vorteilhafte Ausführungsform besteht z.B. darin, im
 1. Reaktor bei unvollständigem Umsatz hohe Ethylenausbeuten zu erzielen und den aus dem ersten Reaktor austretenden Produktstrom in einem weiteren Reaktor oder
 Reaktionszone, der einen Katalysator mit einer unterschiedlichen Aktivität enthält, vollständig umzusetzen.
 Man kann mit Hilfe von Bor, Magnesium, Phosphor und
 Siliciumoxid dotierten Zeolithen vom Pentasiltyp hohe
 Ethylenausbeuten erzielen, wenn die Umsetzung bei tiefen
 Temperaturen und Umsätzen von kleiner als 100 % durchgeführt wird. Auch an Zeolithen vom Typ ZSM-34 und/oder



o. z. 0050/35785

- 9.

Wasserstoffzeolithen vom Pentasiltyp kann man hohe Ethylenausbeuten erzielen, wobei am Anfang der Reaktion nur kleine
Umsätze an Methanol und/oder Dimethylether zu erzielen
sind oder der Umsatz bereits nach kurzer Zeit so stark
zurückgeht, daß bei vollständiger Umsetzung nur kurze
Laufzeiten des Katalysators zu erzielen sind. Die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens wird an Hand der
nachstehenden Beispiele erläutert, die die verschiedenen
Varianten der Reaktionsführung veranschaulichen. In Beispiel 1 wird gezeigt, daß mit Hilfe des erfindungsgemäßen
Verfahrens durch Einleiten des Produktstromes aus dem
1. Reaktor in eine weitere Katalysatorzone unter Mehrung
des relativen Olfinanteil ein vollständiger Umsatz an
Methanol und Dimethylether bei verlängerter Laufzeit zwischen zwei Regenerierungen möglich ist.

Beispiel 1

Der erste Reaktor ist ein Etagenreaktor mit drei Katalysatorzonen. Die Zonen enthalten je 7 g eines Zeoliths vom
Pentasiltyp mit einem SiO₂/Al₂O₃-Molverhältnis von 40 in Form
von 3-mm-Pillen. Die Gaseingangstemperatur in die einzelnen
Reaktionszonen beträgt einheitlich 330°C. Die Beschickung
ist eine 50 %ige wäßrige Methanollösung, die Belastung
8,1 g CH₃OH/g Zeolith/h. Die Umsetzung wird bei 1,14 bar
durchgeführt.

Die Zusammensetzung der erhaltenen Reaktionsprodukte ist in Tabelle 1 dargestellt. Man erkennt, daß bereits nach kurzer Laufzeit der Umsatz nachläßt und das Produktgas größere Mengen Dimethylehter aufweist. Reaktor 2 ist ein adiabatischer Reaktor, der mit 30 g Borsilikatzeolithen

30

10

- 8 -

O. Z. 0050/35785

-10.

vom Pentasil-Typ beschickt ist. Das SiO_2/B_2O_3 -Molverhältnis im Zeolithen beträgt 34. Dieser Katalysator liegt in Form von 3-mm-Strängen vor (Bindemittel Al $_2O_3$, Gewichtsverhältnis Zeolith: Bindemittel = 60 : 40).

5

Der aus dem ersten Reaktor austretende Produktstrom wird auf 500°C aufgeheizt und in den 2. Reaktor eingeleitet. Die Zusammensetzung der erhaltenen Produkte ist in Tabelle 1 dargestellt.

10

Man erkennt, daß der Umsatz an Methanol und Dimethylether 100 % beträgt und der Produktstrom einen erhöhten Olefinanteil aufweist. Die Selektivität zu Ethylen ist größer 20 Gew.-%, bezogen auf das eingesetzte CH₂.

15

Beispiel 2

Der erste Reaktor besteht aus einem Etagenreaktor mit
4 Katalysatorzonen. Die Zonen enthalten je 7 g eines Zeo20 lithen vom Pentasiltyp mit einem SiO₂/Al₂O₃-Molverhältnis
von 40 in Form von 3 mm-Pillen. Die Gaseingangstemperatur
in die einzelnen Reaktionszonen beträgt einheitlich 300°C.
Die Beschickung ist Rohmethanol (83 % Methanol), die Belastung beträgt 10 g CH₃OH/g Zeolith/h. Die Umsetzung wird
1.2 bar durchgeführt.

Der Produktstrom wird auf 500°C aufgeheizt und in einen 2. Reaktor geleitet. Der 2. Reaktor ist mit 30 g eines Borsilikatzeolithen vom Pentasil-Typ beschickt. Das SiO₂/B₂O₃-Molverhältnis im Zeolithen beträgt 34. Dieser Katalysator liegt in Form von 3 mm Strängen vor.

35



- 8 -

O. Z. 0050/35785

n- und Propanausheute zu

Aus Tabelle 1 ist die Ethen- und Propanausbeute zu ersehen. Es ist zu erkennen, daß der Anteil an C₂-C₃ Olefinen beim Durchgang durch den 2. Reaktor steigt und der Anteil an flüssigen Kohlenwasserstoffen abnimmt.

- 11 -

Beispiel 3

5

10

15

20

Der erste Reaktor ist ein Wirbelreaktor gefüllt mit 75 g eines Katalysators auf der Grundlage eines Alumosilikatzeolithen des Pentasiltyps mit einem SiO₂/Al₂O₃-Molverhältnis von 40. Der Katalysator wurde mit Al₂O₃ konfektioniert und die Kornfraktion von 0,1 bis 0,5 mm benutzt. Die Bettemperatur betrug 270 bis 300°C. Die Reaktionslösung ist Rohmethanol (83 % Methanol), die Belastung bezogen auf den Aluminosilikatzeolithen betrug 3,5 h⁻¹. Die Umsetzung wird bei 1,1 bar durchgeführt.

Die Zusammensetzung der erhaltenen Reaktionsprodukte ist in Tabelle 2, Spalte 2 dargestellt. Man erkennt, daß der Umsatz unvollständig ist. Der Produktstrom aus Reaktor 1 wird aufgeheizt auf 500 bis 560°C in einen zweiten Wirbelreaktor eingeleitet.

Der zweite Wirbelreaktor ist mit 60 g eines Borosilikatzeolithen des Pentasiltyps beschickt. Das SiO₂/B₂O₃-Molverhältnis beträgt 40. Der Zeolith wurde mit Al₂O₃ konfektioniert. Die Kornfraktion lag zwischen 0,1 bis 0,5 mm.
Die Zusammensetzung der erhaltenen Produkte ist in Tabelle 2,
Spalte 4 und 5 zu ersehen.

In Tabelle 2, Spalte 3 ist das Produktspektrum abgebildet, das der Katalysator im 2. Wirbelbett unter den erfindungsgemäßen Bedingungen mit Rohmethanol liefert. Man erkennt, daß der Umsatz von Methanol und Dimethylether 100 % be-

35

- 10 -

o.z. 0050/35785

- 12, -

trägt und der Produktstrom einen erhöhten Olefinanteil aufweist. Die Selektivität zu Ethen beträgt größer als 20 % m/m bezogen auf das eingesetzte CH2.

Durch geeignete Temperaturführung können mit dieser Kombi-5 nation auch selektiv flüssige Kohlenwasserstoffe hergestellt werden wie in Tabelle 2, Spalte 6 zu erkennen ist.

10

15

20

25

30

35

BNSDOCID: <DE___3209223A1_I_>

- 11 -

O.Z. 0050/35785

-13 -

5	Stufe 1: Alumosilikat- zeolith Stufe 2: Borosilikat- zeolith	83 10 300/500	22 38 15 15	8 % 100
10	Str All Zec Str Boy			
15	Alumosilikat- zeolith	83 10 300	34 16 30	100 %
20	Stufe 1: Alumosilikat- zeolith Stufe 2: Borosilikat- zeolith	50 8 330/500	25 24 20 16	100 %
25	likat.	50 8 330	22 18 16 25	5 50-60 %
30	r Alumosilikat- zeolith	50 (h ⁻ 1) 8 330	es 23 . 17 . 26 . 36	h] 3 100%
35	Tabelle 1 Katalysator	Methanol: 50 Belastung (h ⁻¹) 8 Eingangs- temp.[^o C] 330	Selektivi- tat (% m/m] bezogen auf eingesetztes CH ₂ Ethen Propen ΣC_{4}	Laufzeit [h] Umsatz

- 1/2 -

o. z. 0050/35785

-14-

30	23	25	20	15 ·	10	5
Tabelle 2						
Katalysator	Alumo- silikat- katalysator	Alumo- silikat- katalysator	Boro- silikat- katalysator	R 1 Alumosilikatzeolith R 2 Borosilikatzeolith	atzeolith tzeolith	
Methanol :	83	83	83	83	83	83
Belastung (h ⁻ ') : Eingangstemp. (^O C):	3,5	3,5 270-300 erf. Bed.	د'ډ 500	5,6 300/500	2,6 270/560	350/460
	1,8	1,0	1,4	1,0	3,0	1,0
	16,9	24,0	0,6	21,0	24,0	7,0
	0,5	0,2	0,2	ı	1,6	1
	15,1	17,0	28,0	26,0	30,0	0,8
	11,2	3,5	4,0	0'5	8,0	11,0
	28,3	11,0	20,5	17,0	19,0	24,0
Gas	14,3	11,0	12,0	14,0	0,8	13,0
	11,5	4,0	24,5	16,0	7,0	36,0
Jmsatz :	100 %	\$0-70 %	. 100 %	100 %	700 %	100 %

THIS PAGE BLANK (USPTO)